

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 02-259199

(43)Date of publication of application : 19.10.1990

(51)Int.Cl.

D21H 21/34  
D01F 6/74  
D06M 11/77  
D21H 13/26  
H01B 3/52

(21)Application number : 01-312248

(71)Applicant : LENZING AG

(22)Date of filing : 29.11.1989

(72)Inventor : LOY WALTER  
VODIUNIG ROBERT  
WEINROTTER KLAUS  
SCHOBESBERGER MANFRED  
SCHOBESBERGER CLAUS

(30)Priority

Priority number : 88 2932    Priority date : 29.11.1988    Priority country : AT  
89 879    13.04.1989

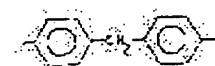
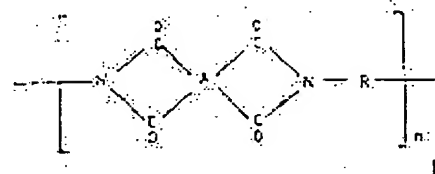
AT

## (54) FLAME-RETARDANT HIGH-HEAT RESISTANT PAPERLIKE MATERIAL AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To obtain a flame-retardant high-heat resistant paperlike material having a specific weight per unit area, etc., and suitable for an insulation material, a sheet sealing material, etc., by bringing a sheetlike structural material of polyimide fiber having a specific structural formula into contact with a polyimide solution and drying.

**CONSTITUTION:** This flame-retardant heat-resistant paperlike material having 60-290 g/m<sup>2</sup> weight per unit area,  $\geq 32\%$  limited oxygen index (LOI),  $\geq 300^\circ$  C and preferably 30-120 N/mm<sup>2</sup> in longitudinal tearing strength, 10-65 kV/mm direct current breakdown voltage and 15-50 kV/mm alternative current breakdown voltage is obtained by bringing a sheetlike structural material (preferably woven fabric, knit fabric or the like) comprising a polyimide fiber having a structure of formula I [A is a group of formula II or the like; R is a group of formula III or the like; (n) is an integer of larger than 1] into contact with a polyimide solution (preferably a solution of dimethylformamide, dimethyl sulfoxide or the like) and drying.



## ⑫ 公開特許公報(A)

平2-259199

⑬ Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成2年(1990)10月19日

D 21 H 21/34  
D 01 F 6/74  
D 06 M 11/77

A 6791-4L

※

審査請求 未請求 請求項の数 16 (全12頁)

⑮ 発明の名称 難燃性耐熱性紙状材料及びその製法

⑯ 特 願 平1-312248

⑰ 出 願 平1(1989)11月29日

優先権主張 ⑱1988年11月29日 ⑲オーストリア(AT) ⑳A2932/88

㉑ 発 明 者 ヴァルター・ロイ オーストリア国 アー-4810 グムンデン、ヴェルフエン  
シュトラアセ 8番

㉒ 発 明 者 ロベルト・フォディウ オーストリア国 アー-8700 レобен、シュトレングエ  
ニツヒ ーク 19/12番

㉓ 発 明 者 クラウス・ヴァインロ オーストリア国 アー-4840 フェックラブルック、フェ  
ッター ルトガツセ 14番

㉔ 出 願 人 レンツィング・アクチ オーストリア国 アー-4860 レンツィング(番地の表示  
エンゲゼルシャフト なし)

㉕ 代 理 人 弁理士 青山 葆 外1名  
最終頁に続く

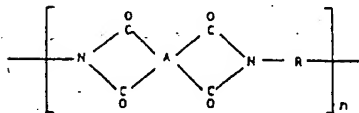
## 明 細 書

## 1. 発明の名称

難燃性耐熱性紙状材料及びその製法

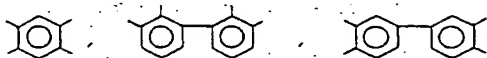
## 2. 特許請求の範囲

## 1. 式:

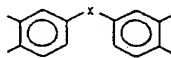


(I)

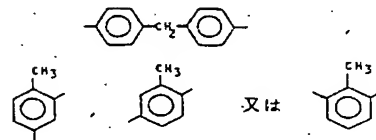
[式中、Aは



又は

(但し、XはCO、CH<sub>2</sub>、O、S又はCF<sub>2</sub>である。)

から選択された4個の芳香族基であり、Rは



から選択された2個の芳香族基であり、nは1よりも大きい整数である。]

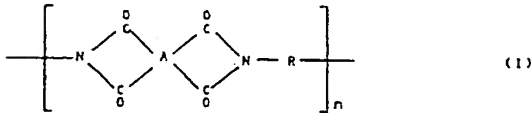
で示されるポリイミドポリマーから成る材料であって、該材料は20~1100g/m<sup>2</sup>、特に60~290g/m<sup>2</sup>の単位面積当たりの重量、少なくとも32%O<sub>2</sub>のLOI(極限酸素指数)値及び少なくとも300℃のT<sub>g</sub>を有する難燃性耐熱性紙状材料。

2. 長さ方向に30~120N/mm<sup>2</sup>の引き裂き強度、及び

直流電圧で10~65kV/mm及び交流電圧で15~50kV/mmの絶縁破壊強度を有する請求項1記載の紙状材料。

3. ポリイミド繊維が、他の耐熱性有機又は無機繊維によって部分的に置き換えられている請求項1又は2記載の紙状材料。

4. 式:



[式中、A、R及びnは前記と同意義である。]

で示されるポリイミド繊維から成る取扱可能なシート状構造物を、ポリイミド溶液と接触し、乾燥し、要すれば密にすることから成る60~290 g/㎡の単位面積当たりの重量を有する請求項1~3のいずれかに記載の難燃性耐熱性紙状材料を製造する方法。

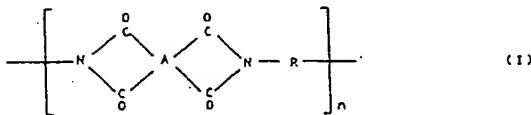
5. 取扱可能なシート状構造物として織物、編物、不織布又はニードルフェルトを、好ましくは熱収縮状態で、使用する請求項4記載の方法。

6. 式(1)で示されるポリイミド(但し、A、R及びnは前記と同意義である。)の極性溶媒中、

-3-

で示される構造単位を有するポリイミド繊維及びポリイミドフィブリル及び/又はポリイミドフィブリドの水性懸濁液から成るパルプを抄紙機により不織布に加工し、次いで湿式プレスし、乾燥することから成る方法。

10. 20~1100 g/㎡の単位面積当たりの重量を有する請求項1~3のいずれかに記載の難燃性耐熱性紙状材料を製造する方法であって、式:



[式中、A、R及びnは前記と同意義である。]

で示される構造単位を有するポリイミド繊維及び要すればポリイミドフィブリドの水性懸濁液から成るパルプを抄紙機により不織布に加工し、次いで湿式プレスし、乾燥することから成り、不織布の形成に必要なポリイミド繊維を非統合状態で、即ち、0.01~120 μmの繊維長を有する状態

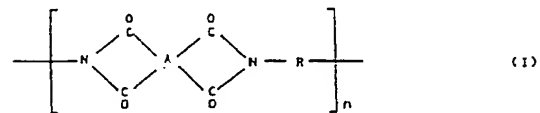
-5-

好ましくはジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、N-メチルピロリドン(NMP)、ジメチルアセトアミド(DMAc)又はこれらの混合物中の溶液を該ポリイミド溶液として使用する請求項4又は5記載の方法。

7. 該ポリイミド溶液のポリマー濃度が3~40重量%である請求項6記載の方法。

8. 乾燥シート状構造物を、2本ロール機、多ロールカレンダー又は段プレスで、好ましくは50~350℃の温度で、密にする請求項4~7のいずれかに記載の方法。

9. 60~290 g/㎡の単位面積当たりの重量を有する請求項1~3のいずれかに記載の難燃性耐熱性紙状材料を製造する方法であって、式:



[式中、A、R及びnは前記と同意義である。]

-4-

で使用する。方法。

11. 水性懸濁液がさらにポリビニルアルコールの繊維を含んで成る請求項10記載の方法。

12. 不織布の形成が抄紙機で行われず、湿式フリース成形機又はシート成形機で行われる請求項10又は11記載の方法。

13. 添加剤及びバインダーをパルプに添加するか又は湿潤プレス不織布に適用する請求項10~12のいずれかに記載の方法。

14. 湿潤プレスシートに、ケイ素化合物を噴霧し、次いで乾燥する請求項13記載の方法。

15. 乾燥不織布を段プレス又は多ロールカレンダーにおいて圧縮する請求項10~13のいずれかに記載の方法。

16. 数枚の重ねた不織布を一体に圧縮する請求項15記載の方法。

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は、熱安定性ポリマーから成る難燃性耐熱性紙状材料、及び該材料を製造する方法に関する

-6-

る。

#### [従来の技術]

熱安定性ポリマーから成る合成紙が知られており、電気絶縁のために主として使用されている。さらに、複合材のためのコア材料(ハネカム)の製造において使用されている。

既知の方法は、従来の抄紙法である。このため、繊維のみならず、フィブリル及び/又はフィブリドをも含有するパルプを、そのような紙の出発原料として調製する必要がある。後者の型の繊維は、セルロース繊維が自然に有する表面構造を有する。この構造は、パルプからの合成紙の製造において避けられない。

そのような製造は、例えば、アメリカ合衆国特許第3,756,908号に記載されている。出発原料は、芳香族ポリアミド(α-アラミド)の繊維又はフィブリドである。繊維は既知の紡糸法によって調製され、フィブリドはポリマー溶液の沈殿によって調製される。繊維/フィブリド混合物の水性スラリーは、抄紙機によって紙に加工される。

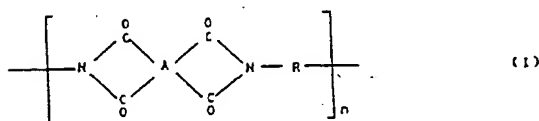
-7-

既知の合成紙、特に芳香族ポリアミドから成るものは、耐熱性、エージング安定性及び高温での安定性に関して、多くの利用分野において満足できるものではない。

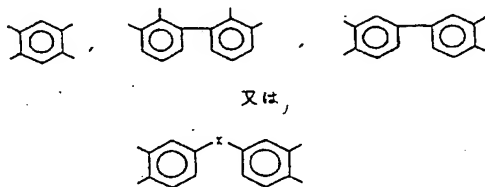
#### [発明の開示]

本発明の目的は、このような不都合を解消することにある。

本発明の要旨は、式：



[式中、Aは



(但し、XはCO、CH<sub>3</sub>、O、S又はCF<sub>3</sub>であ

-9-

この紙は、後にカレンダーに付される。

ヨーロッパ特許出願公告第0,019,113号も紙状シートを取り扱っている。繊維状出発原料及びアモルファス粒子が共通に懸濁される。このパルプから、紙状材料が既知の抄紙法によって得られる。紙の強度は、架橋剤の添加及び放射線照射によって増加する。

アメリカ合衆国特許第2,999,788号は、種々のポリマーのフィブリドからのパルプの製造、及びパルプから製造された構造物に関する。

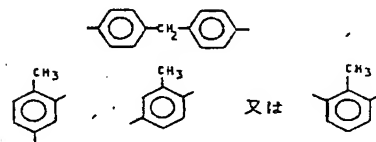
α-アラミドからの(後に合成紙の製造に使用される)フィブリドの製造は、幾つかの日本特許公報に記載されている(特開昭59-47695号、特開昭60-126400号、特開昭61-157532号、特開昭62-85014号、特開昭62-85015号及び特開昭62-85018号参照)。

合成ポリマーからのフィブリドの製造もアメリカ合衆国特許第3,018,091号に記載されている。

-8-

る。)

から選択された4価の芳香族基であり、Rは



から選択された2価の芳香族基であり、nは1よりも大きい整数である。]

で示されるポリイミドポリマーから成る材料であって、該材料は20~1100g/㎡、特に60~290g/㎡の単位面積当たりの重量、少なくとも32%O<sub>2</sub>のLOI(極限酸素指数)値及び少なくとも300℃のT<sub>g</sub>を有する耐熱性難燃性紙状材料に存する。

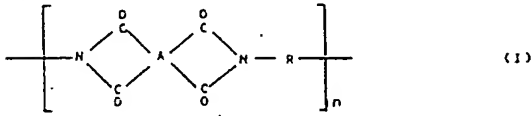
本発明の材料は、さらに、長さ方向に30~120N/㎡の引き裂き強さ、並びに直流電圧で10~65kV/㎡及び交流電圧で15~50kV

-10-

／ $\pi\pi$ の絶縁吸収性を有する。

ポリイミド繊維の一部分は、性質を實質的に変化させない限り、他の耐熱性有機又は無機繊維に置き換えてもよい。

単位面積当たりの重量が60～290g/ $\pi^2$ である本発明の紙状材料は、式：



〔式中、A及びnは前記と同意義であり、Rは2価の芳香族基である。〕

で示されるポリイミド繊維から成る取扱可能なシート状構造物を、ポリイミド溶液に接触し、乾燥し、要すれば密にすることによって製造できる。

前記ポリイミド繊維は既知であり、例えば、オーストリア特許(A-T-B)第377,016号に従って製造できる。

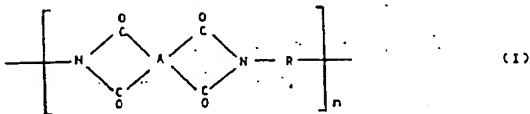
織物、縞物、不織布又はニードルフェルトが、好ましくは熱収縮状態において、取扱可能なシ-

-11-

洗浄タンクに導き、好ましくは60～90℃において溶媒を熱水で抽出する。続いての乾燥は、照射、接触熱又は対流によって行う。

含浸され乾燥されたシート状構造物は、二本ロール機、多ロールカレンダー又は段プレスで、好ましくは50～350℃の温度において、密にされ、その厚さが均一にされる。10～1,000kN/mの線圧(単位長さ当たりのロール分離力)で操作することが最も適している。

単位面積当たり重量60～290g/ $\pi^2$ の本発明の紙状材料は、従来既知の抄紙法を用いることによっても製造でき、式：



〔式中、A、R及びnは前記と同意義である。〕

で示される構造単位を有するポリイミド繊維及びポリイミドフィブリル及び／又はポリイミドフィブリドの水懸濁液から成るパルプを既知の方法

-13-

ト状構造物として使用するのが好都合である。

単位面積当たり重量40～150g/ $\pi^2$ のニードルフェルト又は単位面積当たり重量60～200g/ $\pi^2$ の前もって収縮したニードルフェルトが特に適している。

シート状構造物は式(1)(式中、A、R及びnは前記と同意義である。)で示されるポリイミドの溶液に含浸される。溶媒は、DMP、N-メチルピロリドン(NMP)、ジメチルアセトアミド(DMAc)、DMSO又は他の強極性溶媒及びこれらの混合物であることが好ましい。混合成分として、ジオキサン、塩素化炭化水素などの弱極性又は非極性溶媒さえも使用してよい。溶液のポリマー濃度は3～40重量%であることが好ましい。

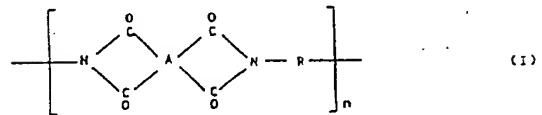
含浸は従来の含浸法の1つにしたがって行え、溶液の温度範囲は10～100℃である。高温範囲において、低粘度の溶液によってより早い含浸、従って高い製造速度が可能になる。

材料シートをポリイミド溶液に通過させ、次いで溶媒を除く。好都合な方法において、シートを

-12-

で、抄紙機により不織布に加工し、次いで湿式プレスし、乾燥する。

単位面積当たり重量20～1,100g/ $\pi^2$ の本発明の紙状材料は、式：



〔式中、A、R及びnは前記と同意義である。〕

で示される構造単位を有するポリイミド繊維、及び要すればポリイミドフィブリドの水懸濁液から成るパルプを、既知の方法により、抄紙機で不織布に加工し、次いで乾燥することによって製造される。不織布の形成に必要なポリイミド繊維は、非統合状態で、即ち、繊維長さ0.01～120 $\mu$ mで使用される。

種々の繊維長さを有する繊維の混合物を使用することが好ましく、紙の特に高い均一性及び強度を達成することができる。使用繊維のタイターは、0.7～20デシテックスが好ましい。

-14-

ポリイミド繊維及びポリイミドフィブリドに加えて、ポリビニルアルコールの繊維を、加工すべきパルプの中に入れてもよい。さらに、アスベスト又はカーボンなどの他のポリマー又は材料の繊維、フィブリド及びフィブリルをパルプに混合してよい。従来の製紙において使用されるいずれかの種類の充填剤が適している。

出発原料は、着色紙を製造するために紡糸染色されていてよい。紡糸添加剤、例えば、カーボンブラックは紙に、固有導電性を加える。

不織布の形成は、抄紙機によって及び湿式フリース成形機又はシート形成機によって行える。

不織布の強度を改良するために、添加剤及びバインダー、例えば、ポリビニルアルコール又はシリコンから成るものをパルプに添加してよい。しかし、湿潤プレス不織布に、噴霧、噴射、散液、浸漬により添加剤及びバインダーを適用してよく、その後に不織布を乾燥する。

シリコンから成るバインダーは、不織布の密化に適している。200℃を越える温度で分解し、

最終製品の性質に悪影響しない微細な二酸化ケイ素を紙中に残すからである。

本発明の方法の好ましい態様は、乾燥不織布を、段プレス又は多ロールカレンダーにおいて圧縮することにある。何枚か重ねた不織布を一体に圧縮することも可能である。

これは、0.1〜1,000 kN/m<sup>2</sup>の線圧及び好ましくは70〜450℃の温度で、行える。多層不織布を圧縮することも可能であり、個々の層の結合は、ポリイミドの熱可塑性によって確実になり、バインダーの添加によって増加する。

本発明により製造された紙状材料は、均一で滑らかな表面を有し、着色、導電性又は高光沢の表面を例えば得るために、既知の方法により塗布できる。

本発明の紙状材料は、高温安定性が必要とされる用途に適しており、例えば、電気工業における絶縁材料として、エンジン、発電機及びトランスにおいて、機械工業におけるシート封止材料として、例えばシリンドラーヘッドガスケットのような

-15-

燃焼エンジンにおける封止材料として、適している。

本発明を以下の実施例により具体的に説明する。単位面積当たりの重量60〜290 g/m<sup>2</sup>及び単位面積当たりの重量20〜1,100 g/m<sup>2</sup>の本発明の紙状材料の製造はそれぞれ実施例1〜6及び実施例10〜24に記載されている。実施例7及び8は従来既知のポリイミドフィブリド及びフィブリルの製造に関する。本発明により製造された紙状材料の性質は、以下の分析法により求めた：

LOI (極限酸素指数) ASTM D-2863

TGA (熱重量分析法)

装置：パーキンエルマー-TGA/2

加熱速度：20℃/分

オンセットによる重量損失の測定

DSC (差動走査熱量法)

装置：パーキンエルマー-DSC/4

加熱速度：20℃/分

絶縁破壊強度 DIN 53481

引張強さ及び伸び DIN 53455

-17-

-16-

#### 実施例1

出発原料：

ポリイミドニードルドフェルト

ベンゾフェノン-3,3',4,4'-テトラカルボン酸二無水物と、4,4'-メチレンビス(フェニルイソシアネート)並びに2,4-及び2,6-トルエンジイソシアネートとから製造(商標名P.84、レンツィング・アクチエンゲゼルシャフト製造)

単位面積当たり重量：85 g/m<sup>2</sup>

幅：約150 mm

ポリイミド溶液：DMF中P.84 20重量%

ニードルドフェルトを22℃で含浸し、乾燥し、以下のパラメーターを維持しながら2本ロールカレンダーによって密にした。

ロール温度：25.0〜24.5℃

ロール隙間：0.04 mm

ロール圧力：10 kN

本発明により得られた紙状材料において、

単位面積当たりの重量は167 g/m<sup>2</sup>

-18-

平均厚さは0.20mmであった。

熱的性質:

LOI: 36~37%O<sub>2</sub>

TGA: 530℃で最大重量損失

Tg温度: 312℃

機械的性質:

引き裂き強さ 長さ方向: 30N/mm<sup>2</sup>

横断方向: 27N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 8%

横断方向: 4%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 40kV/mm

交流電圧: 12kV/mm

実施例2

出発原料:

単位面積当たり重量が120g/m<sup>2</sup>、幅が約150mmである実施例1と同様のポリイミドニードルドフェルト

ポリイミド溶液: DMF中P84 10重量%

ニードルドフェルトを15℃で含浸し、乾燥し、以下のパラメーターを維持しながら2本ロールカ

レンダーによって密にした。

ロール温度: 250℃

ロール隙間: 0.04mm

ロール圧力: 43kN

残りの設定を変えずに通過させ

た後35kN

本発明により得られた紙状材料において、

単位面積当たりの重量は238g/m<sup>2</sup>

平均厚さは0.24mmであった。

熱的性質:

LOI: 36~37%O<sub>2</sub>

TGA: 530℃で最大重量損失

Tg温度: 312℃

機械的性質:

引き裂き強さ 長さ方向: 50N/mm<sup>2</sup>

横断方向: 30N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 6.5%

横断方向: 3%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 30kV/mm

交流電圧: 17kV/mm

-19-

-20-

実施例3

出発原料:

実施例2と同様のポリイミドニードルドフェルト

ポリイミド溶液: DMF中P84 15重量%

ニードルドフェルトを20℃で含浸し、乾燥し、2本ロールカレンダーによって密にした。

本発明により得られた紙状材料において、

単位面積当たりの重量は222g/m<sup>2</sup>

平均厚さは0.28mmであった。

熱的性質:

LOI: 36~37%O<sub>2</sub>

TGA: 530℃で最大重量損失

Tg温度: 312℃

機械的性質:

引き裂き強さ 長さ方向: 33N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 7.5%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 25kV/mm

交流電圧: 9kV/mm

実施例4

出発原料:

単位面積当たり重量が60g/m<sup>2</sup>、幅が約150mmである実施例1と同様のポリイミドニードルドフェルト

ポリイミド溶液: DMF中P84 30重量%

ニードルドフェルトを55℃で含浸し、乾燥し、以下のパラメーターを維持しながら2本ロールカレンダーによって密にした。

ロール温度: 250℃

ロール隙間: 0.04mm

ロール圧力: 10kN

本発明により得られた紙状材料において、

単位面積当たりの重量は90g/m<sup>2</sup>

平均厚さは0.15mmであった。

熱的性質:

LOI: 36~37%O<sub>2</sub>

TGA: 530℃で最大重量損失

Tg温度: 312℃

機械的性質:

引き裂き強さ 長さ方向: 50N/mm<sup>2</sup>

-21-

-754-

-22-

横断方向:  $30\text{ N/mm}^2$   
 伸び 長さ方向: 4 %  
 横断方向: 3 %  
 絶縁破壊強さ 直流電圧:  $55\text{ kV/mm}$   
 交流電圧:  $40\text{ kV/mm}$

実施例 5

出発原料:

単位面積当たり重量が  $240\text{ g/m}^2$ 、幅が約  $150\text{ mm}$ である実施例 1 と同様のポリイミドニードルドフェルト  
 ポリイミド溶液: DMF 中 P 84 10 重量 %  
 ニードルドフェルトを  $20^\circ\text{C}$  で含浸し、乾燥し、以下のパラメーターを維持しながら 2 本ロールカレンダーによって密にした。

ロール温度:  $250^\circ\text{C}$   
 ロール隙間:  $0.04\text{ mm}$   
 ロール圧力:  $40 \sim 52\text{ kN}$

本発明により得られた紙状材料において、

単位面積当たりの重量は  $260\text{ g/m}^2$   
 平均厚さは  $0.26\text{ mm}$ であった。

- 23 -

ロール温度:  $230 \sim 240^\circ\text{C}$   
 ロール隙間:  $0.04\text{ mm}$   
 ロール圧力:  $35\text{ kN}$

本発明により得られた紙状材料において、

単位面積当たりの重量は  $290\text{ g/m}^2$   
 平均厚さは  $0.35\text{ mm}$ であった。

熱的性質:

LOI:  $36 \sim 37\%$   
 TGA:  $530^\circ\text{C}$  で最大重量損失  
 Tg 温度:  $312^\circ\text{C}$

機械的性質:

引き裂き強さ 長さ方向:  $110\text{ N/mm}^2$   
 横断方向:  $90\text{ N/mm}^2$   
 伸び 長さ方向: 15 %  
 横断方向: 12 %

絶縁破壊強さ 直流電圧:  $12\text{ kV/mm}$   
 交流電圧:  $9\text{ kV/mm}$

実施例 7

水性沈殿浴にポリマー溶液を噴霧することによって、フィブリドを製造した。

- 25 -

熱的性質:

LOI:  $36 \sim 37\%$   
 TGA:  $530^\circ\text{C}$  で最大重量損失  
 Tg 温度:  $312^\circ\text{C}$

機械的性質:

引き裂き強さ 長さ方向:  $60\text{ N/mm}^2$   
 横断方向:  $40\text{ N/mm}^2$   
 伸び 長さ方向: 9 %  
 横断方向: 6 %  
 絶縁破壊強さ 直流電圧:  $25\text{ kV/mm}$   
 交流電圧:  $10\text{ kV/mm}$

実施例 6

出発原料:

単位面積当たり重量が  $260\text{ g/m}^2$ 、幅が約  $150\text{ mm}$ である実施例 1 と同様のポリイミドニードルドフェルト

ポリイミド溶液: DMF 中 P 84 15 重量 %  
 ニードルドフェルトを  $20^\circ\text{C}$  で含浸し、乾燥し、以下のパラメーターを維持しながら 2 本ロールカレンダーによって密にした。

- 24 -

このため、P 84 の 5 % DMF 溶液を、ギアポンプによって 2 成分紡糸口金に供給し、圧縮空気によって水性沈殿浴に噴霧した。

紡糸口金直径:  $2.1\text{ mm}$   
 供給速度(ポリマー溶液):  $100\text{ cm}^3/\text{分}$   
 圧縮空気圧: 6 バール

得られたフィブリドの直径は平均で  $2 \sim 3\text{ mm}$ であった。

実施例 8

$5\text{ mm}$  のステーブル長さ及び  $2.2$  デシテックスのタイターを有するポリイミド繊維を水中に入れた。懸濁液をコーンリファイナーに供給し、フィブリル化度(フィブリル部分)が約 40 % になるまで、保った。

コンシステンシー: 4 %  
 コニカルローター(8°):  $1500\text{ rpm}$   
 吸入圧力: 0.5 バール  
 排出圧力: 3.5 バール  
 滞留時間: 40 分

実施例 9

- 755 -

- 26 -



5mmのステープル長さ及び2.2デシテックスのタイターを有するポリイミド繊維を、フィブリル化度が約90%になるまで、インパクトミル(プレートインパクトメカニズム、スクリーンリング0.5mm、波形台形、13900rpm)で循環させた。

#### 実施例10

2.2デシテックスの繊維タイター及び2.5mm、5.0mm及び10.0mmのステープル長さを有するポリイミド繊維、長さ0.01~5mmの粉碎ポリイミド繊維並びにポリビニルアルコール繊維を重量比16:16:15:50:3で、水中のスラリーとし、湿式フリース成形機で不織布に成形し、湿式プレスし、乾燥した。乾燥不織布の単位面積当たりの重量は183g/m<sup>2</sup>であり、これを280℃、290バーで段プレスによりプレスした。

熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 312℃

-27-

Tg: 312℃

機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 27N/mm<sup>2</sup>

横断方向: 22N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 19%

横断方向: 15%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 47kV/mm

交流電圧: 26kV/mm

#### 実施例12

0.7デシテックスの繊維タイター及び2.5mmのステープル長さを有するポリイミド繊維、長さ0.01~5mmの粉碎ポリイミド繊維並びにポリビニルアルコール繊維を重量比48.5:48.5:3で、水に入れ、湿式フリース成形機で不織布に成形し、湿式プレスし、乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は102g/m<sup>2</sup>であり、これを450℃、50バーで段プレスによりプレスした。

熱的性質:

LOI: 39~40%O<sub>2</sub>

-29-

機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 31N/mm<sup>2</sup>

横断方向: 26N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 12%

横断方向: 10%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 12kV/mm

交流電圧: 6kV/mm

#### 実施例11

2.2デシテックスの繊維タイター及び2.5mm、5.0mm及び10.0mmのステープル長さを有するポリイミド繊維、長さ0.01~5mmの粉碎ポリイミド繊維並びにポリビニルアルコール繊維を重量比16:16:15:50:3で、水中のスラリーとし、湿式フリース成形機で不織布に成形し、湿式プレスし、乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は183g/m<sup>2</sup>であり、これを70℃、490バーで段プレスによりプレスした。

熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

-28-

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 334℃

機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 67N/mm<sup>2</sup>

横断方向: 56N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 11%

横断方向: 9%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 11kV/mm

交流電圧: 6kV/mm

#### 実施例13

1.7デシテックスの繊維タイター及び2.5mm及び5.0mmのステープル長さを有するポリイミド繊維、並びにポリビニルアルコール繊維を重量比60:37:3で、水中のスラリーとし、湿式フリース成形機で不織布に成形し、湿式プレスし、乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は70g/m<sup>2</sup>であり、これを350℃、250バーで段プレスによりプレスした。

熱的性質:

LOI: 38~39%O<sub>2</sub>

-30-

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 328℃

## 機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 81N/mm<sup>2</sup>横断方向: 68N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 7%

横断方向: 5%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 14kV/mm

交流電圧: 7kV/mm

## 実施例14

長さ約0.01~5.0mmの粉碎ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、抄紙機で不織布に成形し、湿式プレスし、バインダーを噴霧し、乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は40g/m<sup>2</sup>であり、これを350℃、500N/mm<sup>2</sup>で二本ロールカレンダーによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 38~39%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 328℃

-31-

横断方向: 98N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 8%

横断方向: 5%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 75kV/mm

交流電圧: 42kV/mm

## 実施例16

長さ0.01~5.0mmの粉碎ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、シート形成機で不織布に成形し、湿式プレスし、乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は252g/m<sup>2</sup>であり、これを330℃、340バールで段プレスによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 319℃

## 機械的性質:

引張強さ 79N/mm<sup>2</sup>

伸び 10%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 21kV/mm

-33-

## 機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 30N/mm<sup>2</sup>横断方向: 25N/mm<sup>2</sup>

伸び 長さ方向: 12%

横断方向: 9%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 13kV/mm

交流電圧: 7kV/mm

## 実施例15

長さ0.01~5.0mmの粉碎ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、抄紙機で湿潤不織布に成形し、湿式プレスし、バインダーを噴霧し、乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は55g/m<sup>2</sup>であり、これを350℃、1000kN/m<sup>2</sup>で二本ロールカレンダーによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 38~39%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 328℃

## 機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 117N/mm<sup>2</sup>

-32-

交流電圧: 11kV/mm

## 実施例17

長さ0.01~5.0mmの粉碎ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、シート形成機で不織布に成形し、湿式プレスし、バインダーを噴霧し、乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は105g/m<sup>2</sup>であり、これを350℃、480バールで段プレスにより3層でプレスした。単位面積当たりの重量は315g/m<sup>2</sup>であった。3層の分離は不可能であった。

## 熱的性質:

LOI: 38~39%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 328℃

## 機械的性質:

引張強さ 75N/mm<sup>2</sup>

伸び 13%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 68kV/mm

交流電圧: 39kV/mm

## 実施例18

-757-

-34-

2.2 デシテックスの繊維タイター及び 2.5 mm、5.0 mm 及び 10.0 mm のステーブル長さを有するポリイミド繊維、並びに繊維長 0.01~5 mm の粉砕ポリイミド繊維を量比 19:16:15:50 で、水中のスラリーとし、湿式フリース形成機で不織布に成形し、湿式プレスし乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は 183 g/m<sup>2</sup> であり、これを乾燥直後に 22℃、500 kN/m で二本ロールカレンダーによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>,  
TGA: 564℃でオンセット  
Tg: 312℃

## 機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 33 N/mm<sup>2</sup>  
横断方向: 28 N/mm<sup>2</sup>  
伸び 長さ方向: 17%  
横断方向: 14%  
絶縁破壊強さ 直流電圧: 66 kV/mm  
交流電圧: 37 kV/mm

-35-

を噴霧し、150℃で乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は 205 g/m<sup>2</sup> であり、これを 320℃、350 パールで段プレスによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>,  
TGA: 564℃でオンセット  
Tg: 312℃

## 機械的性質:

引張強さ 長さ方向: 75 N/mm<sup>2</sup>  
横断方向: 63 N/mm<sup>2</sup>  
伸び 長さ方向: 10%  
横断方向: 8%  
絶縁破壊強さ 直流電圧: 24 kV/mm  
交流電圧: 13 kV/mm

## 実施例 2.1

長さ 0.01~5.0 mm の粉砕ポリイミド繊維及びポリイミドフィブリドを量比 50:50 で水中のスラリーとし、シート形成機で不織布に成形し、湿式プレスし、105℃で乾燥した。得られた不

-37-

## 実施例 1.9

長さ 0.01~5.0 mm の粉砕ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、シート形成機で不織布に成形し、湿式プレスし、350℃で乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は 100 g/m<sup>2</sup> であった。乾燥工程直後に、塩温 21℃、480 パールで段プレスによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>,  
TGA: 564℃でオンセット  
Tg: 312℃

## 機械的性質:

引張強さ 15 N/mm<sup>2</sup>  
伸び 18%  
絶縁破壊強さ 直流電圧: 44 kV/mm  
交流電圧: 25 kV/mm

## 実施例 2.0

長さ 0.01~5.0 mm の粉砕ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、湿式フリース形成機で湿潤不織布に成形し、湿式プレスし、シリコン仕上剤

-36-

不織布の単位面積当たりの重量は 1090 g/m<sup>2</sup> であり、これを 350℃、380 パールで段プレスによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 38~39%O<sub>2</sub>,  
TGA: 564℃でオンセット  
Tg: 328℃

## 機械的性質:

引張強さ 57 N/mm<sup>2</sup>  
伸び 14%  
絶縁破壊強さ 直流電圧: 31 kV/mm  
交流電圧: 17 kV/mm

## 実施例 2.2

ポリイミドフィブリドを水に入れ、シート形成機で不織布に成形し、湿式プレスし、105℃で乾燥した。得られた不織布の単位面積当たりの重量は 1090 g/m<sup>2</sup> であり、これを 350℃、380 パールで段プレスによりプレスした。

## 熱的性質:

LOI: 38~39%O<sub>2</sub>,

-38-

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 328℃

機械的性質:

引張強さ 57N/mm<sup>2</sup>

伸び 14%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 31kV/mm

交流電圧: 17kV/mm

実施例 2.3

長さ2.5mm及びタイター2.2デシテックスの  
ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、シート形  
成機で不織布に成形し、湿式プレスし、シリコン  
仕上剤を噴霧し、150℃で乾燥した。得られた  
不織布の単位面積当たりの重量は210g/m<sup>2</sup>で  
あり、これを320℃、350バールで段プレス  
によりプレスした。

熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 312℃

機械的性質:

-39-

交流電圧: 7kV/mm

特許出願人 レンツィング・アクチエン

ゲゼルシャフト

代理人 弁理士 青山 稔 ほか1名

引張強さ 88N/mm<sup>2</sup>

伸び 12%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 21kV/mm

交流電圧: 10kV/mm

実施例 2.4

長さ120mm及びタイター20デシテックスの  
ポリイミド繊維を水中のスラリーとし、シート形  
成機で不織布に成形し、湿式プレスし、シリコン  
仕上剤を噴霧し、150℃で乾燥した。得られた  
不織布の単位面積当たりの重量は503g/m<sup>2</sup>で  
あり、320℃、350バールで段プレスにより  
プレスした。

熱的性質:

LOI: 37~38%O<sub>2</sub>

TGA: 564℃でオンセット

Tg: 312℃

機械的性質:

引張強さ 81N/mm<sup>2</sup>

伸び 20%

絶縁破壊強さ 直流電圧: 19kV/mm

-40-

第1頁の続き

⑤Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

D 21 H 13/26  
H 01 B 3/52

C 6969-5 G

優先権主張 ⑫1988年4月13日⑬オーストリア(AT)⑭A879/89

⑯発明者	マンフレート・シヨー	オーストリア国	アー-4861	ゼーヴアルヒエン	ゲール
	ベスベルガー		ハム	44番	
⑰発明者	クラウス・シヨーベス	オーストリア国	アー-4840	フェツクラブルツク、ドク	
	ベルガー		トル・ハンプルガーシュトラセア	21/3番	

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**